

2. 大気質モデルの検討

平成 17 年度にとりまとめられた「平成 17 年度浮遊粒子状物質及び光化学オキシダントの生成に係る調査報告書」に、環境省で使用実績のある大気質モデルについては、以下通り整理されている。

表 2-1 に環境省が過去に行ってきたオゾン、SPM に関するモデルについて整理した。それぞれのモデルは、実施した時点では、最新の知見を反映し、かつ、目的に合致したものであるが、現在の時点で今後の利用を行うことを念頭に評価を行うと以下ようになる。

- ・ 定常モデル（H14 年）に関しては、気象ならびに輸送・拡散過程を簡略化したモデルであり、計算量が少ないことから、大量の計算（たとえば年間を通じた計算など）が可能であるが、ある特定の高濃度日における時間変動と言った精細な計算をするには適さない。定常モデル（H14）では、化学反応には CBM-IV を、有機粒子の二次生成に関しては、解析型/統計型モデルを用いている。
- ・ 非定常モデル（H14 年）に関しては、気象ならびに輸送・拡散過程については、現代的なモデルであると言えるが、化学反応については CBM-IV を利用しており、精細な評価を行うことができない点が最大の問題である。また、有機粒子の二次生成に関しては物質群ごとにエアロゾル収率を用いて、CBM-IV で解く方法を用いている。
- ・ SAPRC-99 ボックスモデル(H16 年)は、化学反応については SAPRC-99 を用いて、化学物質ごとの精細な評価を行うことができるが、ボックスモデルを用いていることから、気象場としてはボックス内一様・完全混合となっており、広域的な大気汚染の状況を再現するには不適である。ただし、除外物質の検討にはこのモデルを用いて算出した評価指標 MIR(Maximum Incremental Reactivity)を用いており、今後も新たな指標への変更を行わない限り、除外物質の検討には SAPRC-99 ボックスモデルを用いることとなると考えられる。
- ・ 長距離輸送モデルは、単独で計算・評価が行われており、長距離輸送モデルと地域モデル（定常モデル、非定常モデル）との連携は非常に煩雑である。

なお、浮遊粒子状物質についての環境基準によれば、年間の 2%除外値を用いることとなっているが、シミュレーションの精度、あるいは、環境基準は最低限守るべき基準であって、更なる汚染の低減が好ましいことから、シミュレーションを行う場合に 2%除外値を精密に計算する必要はないものと考えられる。

表 2-1 環境省過去調査におけるオゾン/SPM モデルの比較イメージ

	定常モデル	非定常モデル	SAPRC-99 ボックスモデル	長距離輸送
実施事業者	数理計画	日本気象協会	日本エヌ・ユー・エス	数理計画
実施年度	H14	H14	H16	H14
対象物質	SPM	オゾン/SPM	オゾンのみ	SPM
目的	二次生成粒子解析型モデルによる年平均値の導出により、排出量の変化による効果を評価	物理化学的過程に基づく、VOC削減量に対する環境基準達成状況の変化の評価	各 VOC によるオゾン最大生成能の評価 NOx 量を増減させ、付加生成量の最大を探索する	排出・輸送・光化学反応・沈着過程を含んだ輸送モデルによる東アジア域における長距離輸送の評価
対象領域	関東(39 ブロック) 関西(29 ブロック)	関東(200km × 200km)	関東(70km × 70km) 関西(30km × 40km)	東アジア
対象期間	年(年平均値)	1日から数日	1日から数日程度	
対象となる現象	観測点ごとの年平均値	メッシュごとの時間値	地域的高濃度現象の再現	
空間表現	気象ブロック	メッシュ	ボックス(全領域一様)	東アジア域(3段階のメッシュ)
気象モデル	ブロック代表観測局の年間の気象	局地気象モデル(600km × 600km)	高濃度日の代表的気象 全領域一様	NCAR/PSU MM5
拡散・輸送モデル	ブルーム式	オイラー型輸送モデル	なし(全領域一様)	RAQM(東アジア域における酸性雨モデル)
化学反応モデル	CBM-IV	CBM-IV	SAPRC99	CBM-IV(簡略版)
有機粒子生成モデル	解析型/統計型モデル	CBM-IV(物質群ごとにエアロゾル収率を設定)	なし(対象外)	なし
VOC の扱い	炭素結合種(物質群)	炭素結合種(物質群)	物質群 / 物質ごと	炭素結合種(物質群)
排出源モデル	SOx, NOx, PM, 粉じん等(Dust), 塩化物塩(HCl), 炭化水素(HC)	CO, EC, OC, NH ₃	NOx, 炭化水素(HC) H14 データ	アイオワ州立大学(地球・地域規模の環境調査センター)による
総評	解析型モデルであり、年平均値以外には適さない。	空間的には詳細 化学変化は粗い	化学変化：詳細 空間表現：粗い	長距離輸送される粒子のみを対象としている

- 長距離輸送モデルは、他のモデルとは目的が大きく異なるため、参考として記述した。
- NCAR:米国大気研究センター、PSU:ペンシルバニア州立大学、MM5 第5世代メソスケールモデル

また、過去に行われてきたシミュレーション内容とあわせて、今後高度化が必要な点として、以下の項目を挙げている。

- モデルの信頼性、最新の知見を含んだものかどうか。
 - 特にこれまで簡易的な取扱であった、SPMのうち有機二次粒子の生成過程について、新たな知見を含んだもの
 - SPM/O_xの原因物質としてのVOCを個別に扱うことができるもの
 - 越境大気汚染と国内起源のVOC、NO_xとの寄与について評価が可能であること。
 - より多い地域・計算ケース（気象条件、削減ケース等）を網羅すること
- SPM/O_xのシミュレーションを行うには、いろいろなメカニズムを対象とした複数のモデルを組み合わせて計算を行うことが必要とされることから、上記のような条件に加えて、
- いろいろなメカニズムを対象とした複数のモデルを、統一的なフレームワークでとりまとめた統合的なモデルであること
 - 信頼性、知見、越境汚染の評価、計算ケースの充実など、種々の要求を踏まえ、信頼できる機関がとりまとめを行っていること
- の二点が満たされることが、大変望ましい。

このような点を踏まえ、本節ではこれまで世界的に実績のある大気質モデルについて、情報整理を行い、本業務で利用する大気質モデルについて検討を行った。

2.1 大気質モデルの概要比較

大気質モデルとしては、大きく解析解型のモデルと数値解型のモデルに分類出来る。さらに、解析解型、数値解型の分類の中でいくつかのモデルが存在し、それぞれ適切な使用目的、長所、短所があり、表2-2のように整理出来る(大原ら, 1997)。一般的に解析解型モデルはその簡略性のため、主として行政目的に使用される頻度が高い一方で、現象を単純化する様々な仮定の下に成立するモデルで、複雑な現象(複雑な気流場での現象、非定常現象、複雑な反応・沈着現象を伴う現象等)には適用出来ないケースが多いとされている(大原ら, 1997)。また、Seigneur(2001)は、数値解型のモデルでもボックスモデルやラグランジュ型モデルは特定の事例に対しては有効であるが、広範囲にわたる化学輸送プロセスを取り扱うには、3Dオイラー型モデルが最適であると述べている。そこで、Seigneur(2001)の文献を基に、これまでに適用実績の多い、3-D オイラー型大気質モデル 11 について、特徴を整理した(表 2-3)。なお、表 2-3 の reference のリストは節末に整理した。

表2-2 大気汚染シミュレーションモデルのタイプ (大原ら, 1997)

方法	モデル	概要	使用目的 研究⇄実用	スケール 大⇄小	適用される流れ場	使用される気象モデル	長所	短所	
解析解	ブルーム	拡散状態を煙流で表現する。計算は非常に簡単であるが、多くの仮定のもとでのみ成立する。複雑地形場に対応したモデルとしてガウス型流跡モデルがある。	—	—	水平スケール 10km程度までの単純場	実測結果に基づく設定	計算が容易	複雑な現象には適用が困難	
	パフ	拡散状態を煙塊で表現する。ブルームモデルとは異なり、非定常場や静穏時にもある程度適用できる。	—	—	ブルームモデルよりもやや大きい	〃	〃	〃	
数値解	ラグランジュ型	トラジェクトリー	トラジェクトリー (流跡線) に沿って濃度変化を計算する。	—	—	スケールによらない比較的単純な場	・数値気象モデル ・客観解析モデル	移流項の計算が不要。ソース・リセプター関係が明確	生成するトラジェクトリーの精度に限界
		ラグランジュ型粒子	大気中の物質を模擬した粒子を平均風と乱れにより移動させて濃度分布を計算する。	—	—	複雑な場でも適用可	・数値気象モデル ・客観解析モデル	疑似拡散なし	大きなスケールで濃度分布を得るには計算コスト大
	オイラー型	渦拡散 (グリッド)	勾配拡散 (1次のクロージャー) の方程式を差分法等により数値的に解く。なお、このモデルを簡略化したモデルとして、拡散方程式を空間平均しボックス内の物質収支を計算するボックスモデルがある。	—	—	基本的にあらゆる場	・数値気象モデル ・客観解析モデル	適用性が広い	・計算コスト大 ・疑似拡散
2次クロージャー		渦拡散モデルと異なり、勾配拡散関係を仮定せずに濃度の2次モーメント量まで計算対象にするモデルで、構造はかなり複雑となる。	—	—	〃	数値気象モデルの乱れの2次モーメントを計算可能なこと	勾配-フラックス仮定が不要	計算コスト非常に大。乱流統計量を与える必要あり	

表 2 - 3 (1) 主要な大気質モデルの概要(Seigneur, 2001)

Table 3. Summary of the major characteristics of selected air quality models for PM.

Model	Spatial and Temporal Characteristics	Gas-Phase Chemistry (Mechanism and Number of Reactions)	Aqueous-Phase Chemistry	Inorganic PM (Thermodynamic Module and Species)	Organic PM	Size Distribution (Processes Treated)	Applications to Date	References
CIT	Urban scale, episodic	CACM (361 reactions)	None	SCAPE2 (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , CO_3^{2-} , BC, H_2O , other)	42 condensable species grouped into 5 hydrophobic and 5 hydrophilic surrogate species, primary OC	Sectional (nucleation, condensation, kinetic mass transfer)	Los Angeles Basin, CA	19
DAQM-V2	Urban to regional scale, episodic	RADM2 (158 reactions)	19 equilibria and 5 reactions for SO_4^{2-}	MARS (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , H_2O , BC, other)	6 hydrophobic condensable species, primary OC	Modal (nucleation, condensation, coagulation)	Denver, CO	62
GATOR	Urban, regional to global scale, episodic	Augmented CBM-IV (more than 200 reactions)	67 reactions	EQUISOLV II (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , CO_3^{2-} , BC, H_2O , other)	10 soluble VOC species, several nonvolatile species, primary OC	Sectional (nucleation, condensation, coagulation, kinetic mass transfer)	Los Angeles Basin, CA	63
Models-3/CMAQ	Urban to regional scale, episodic to long-term	CBM-IV (93 reactions) or RADM2 (158 reactions)	19 equilibria and 5 reactions for SO_4^{2-}	MARS (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , H_2O , BC, other)	6 hydrophobic condensable species, primary OC	Modal (nucleation, condensation, coagulation)	Eastern United States; western United States; contiguous United States; Los Angeles Basin, CA; Nashville, TN; Vancouver, Canada	64
Models-3/CMAQ EPR/CARB version ^a	Urban to regional scale, episodic	CBM-IV (93 reactions) or CACM (361 reactions)	35 equilibria and 99 reactions for SO_4^{2-} and NO_3^-	ISORROPIA (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- , Na^+ , H_2O , BC, other)	38 hydrophobic condensable species or 42 condensable species grouped into 5 hydrophobic and 5 hydrophilic surrogate species, primary OC	Sectional (nucleation, condensation, hybrid mass transfer)	Los Angeles Basin, CA; Nashville, TN	65
SAQM-AERO	Urban to regional scale, episodic	CBM-IV (~90 reactions)	None	SEUILIB (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- , Na^+ , H_2O , BC, other)	Nonvolatile species, primary OC	Sectional (nucleation, condensation, hybrid mass transfer)	San Joaquin Valley, CA; Los Angeles Basin, CA	3,66

表 2 - 3(2) 主要な大気質モデルの概要(Seigneur, 2001)

Table 3. (cont.)

Model	Spatial and Temporal Characteristics	Gas-Phase Chemistry (Mechanism and Number of Reactions)	Aqueous-Phase Chemistry	Inorganic PM (Thermodynamic Module and Species)	Organic PM	Size Distribution (Processes Treated)	Applications to Date	References
UAM-AERO CRC Version ^b	Urban scale, episodic	SAPRC97 (185 reactions)	35 equilibria and 99 reactions for SO_4^{2-} and NO_3^-	ISORROPIA (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- , Na^+ , H_2O , BC, other)	6 hydrophobic condensable species, primary OC	Sectional (nucleation, condensation, hybrid mass transfer)	Los Angeles Basin, CA (CRC, CARB, and Sun/Wexler versions); San Joaquin Valley, CA; Salt Lake City, UT; Tokyo, Japan (CARB version)	12,56
REMSAD Version 6	Regional scale, long-term	μCB4 (60 reactions)	3 reactions for SO_4^{2-}	MARS (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , H_2O , BC, other)	Primary OC	Fine and coarse (condensation)	Eastern United States; contiguous United States	67,68
UAMAERO-LT	Urban scale, long-term	CBM-IV (~90 reactions)	Simple parameterization for SO_4^{2-}	Parameterization (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- , Na^+ , H_2O , BC, other)	2 hydrophobic condensable species, primary OC	Fine and coarse (condensation)	Los Angeles Basin, CA	69
UAM-LC	Urban scale, long-term	Parameterized chemistry	Simple parameterization for SO_4^{2-}	Parameterization (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- , Na^+ , H_2O , BC, other)	Primary OC	One section (condensation)	Los Angeles Basin, CA; Phoenix, AZ	70
URM	Urban to regional scale, episodic	LLC (~100 reactions)	2 reactions for SO_4^{2-}	ISORROPIA (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ , Cl^- , Na^+ , H_2O , BC, other)	Nonvolatile species, primary OC	Sectional (condensation)	Eastern United States (southern Appalachian Mountains)	71,72

^aEPRI is formerly Electric Power Research Institute, Palo Alto, CA; CARB is California Air Resources Board, Sacramento, CA; ^bCRC is Coordinating Research Council, Alpharetta, GA; the CARB version⁵⁶ has a parameterized aqueous-phase chemistry; the version by Sun and Wexler²² (UAM-AIM) uses the results of a Gibbs energy minimization for inorganic aerosol thermodynamics.

(1) 空間・時間スケール

4つのモデル(CIT, UAM-AERO, UAM-LC, UAMAERO-LT)については、大気境界層以下あるいは下層対流圏のみを考慮しているため、対象範囲は urban-scale に限定される。他の7つのモデルについては自由対流圏から下層成層圏までを考慮しているため、regional-scale の計算が可能である。対象とする時間スケールは、3つのモデル(REMSAD, UAMAERO-LT, UAM-LC)については、簡易的な気相反応、粒子化反応を用いているため、比較的長期間(例えば通年)を対象とした事例解析に用いられる。他のモデルについては詳細な化学反応を扱っており、エピソード解析(例えば数日)に適している。ただし、CMAQ については、36km の解像度で、全米を対象とした通年の計算を行った実績がある。

(2) 気相反応

UAM-LC 以外のモデルはオキシダント生成や H_2SO_4 や HNO_3 、OC 等の凝縮性粒子を再現するために詳細な気相反応を扱っている。最も詳細な気相反応モデルを導入しているのは CIT と CMAQ である。

(3) 液相反応

CIT, SAQM-AERO, UAMAERO-LT, UAM-LC 以外のモデルでは、液相反応を理論的に扱っている。このうち REMSAD は SO_4^{2-} の反応のみを扱っているが、CMAQ, UAM-AERO については、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 Cl^- 、 CO_3^{2-} およびいくつかの有機物の反応機構を取り入れている。

(4) 粒子の化学組成(無機成分)

全てのモデルで SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 、 H_2O 、BC を無機成分として扱っており、いくつかのモデル(CIT, GATOR, CMAQ, SAQM-AERO, UAM-AERO, UAM-LC)では、 Na^+ と Cl^- についても扱っている。 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} などの土壌粒子を扱っているのは 2 つのモデル(CIT, GATOR)である。

(5) 粒子の化学組成(有機成分)

全てのモデルで一次 OC は取り扱っているが、二次生成の OC(SOA) の取り扱いはモデルによって扱いが異なる。REMSAD や UAM-LC などいくつかのモデルでは SOA の生成については考慮していない。URM や SAQM-AERO については、前駆物質である VOC に固定の粒子収率を仮定している。DAQM, CMAQ, UAM-AERO では、凝縮性有機化合物の気相 / 粒子の分配係数を仮定して、SOA を考慮している。凝縮性有機化合物について、最も包括的なアプローチは、粒子の有機相に取り込まれる疎水性有機化合物と、水相に取り込まれる親水性化合物の 2 つのカテゴリーに分けて取り扱う方法であり、CIT および CMAQ ではこの考え方が導入されている。

(6) 粒子の粒径分布

粒子の粒径分布の扱いは以下の 3 つに分類出来る。

simple (fine and coarse)

REMSAD, UAM-LC, UAMAERO-LC

modal

DAQM, CMAQ

sectional

CIT, GATOR, CMAQ, SAQM-AERO, UAM-AERO, URM

米国の環境保護庁(EPA)は、精緻・包括化の進んでいる最近の三次元オイラー型の大気質モデルを第三世代と称している。EPA によれば、1980 年代以降開発が続けられてきた RADM, UAM といったモデルは第二世代であり、それ以前のパフ型、プリューム型のラグランジュ型モデルが第一世代である。第三世代のモデルには CMAQ やこれら第二世代のモデルの後継バージョンが含まれている(国立環境研究所, 2000)。これらのモデルの世代交代に伴い、モデルの適用実績についても、UAM は 2000 年前後の報告事例が多いが(例えば、Wakamatsu *et al.*, 1999; Streets *et al.*, 2001; Biswas *et al.*, 2001)、EPA が CMAQ の開発を進めたことで、ここ数年は CMAQ の適用事例が非常に多くなっている。そこで、次節では CMAQ に的を絞って、モデルの内容、適応事例等について情報を整理した。

Reference (Seigneur, 2001)

- 19 : Griffin, R.J., Dabdub, D., Fraser, M.P., Kleeman, M., Cass, G.R., Seinfeld, J.H. Thermodynamic Simulation of Secondary Organic Aerosol Using a Three-Dimensional Air Quality Model for Los Angeles. Presented at the 19th Annual American Association for Aerosol Research Conference, St. Louis, MO, Paper No. 8D2, November 6-10 (2000)
- 62 : Regional Air Quality Council(RAQC). Development of the Denver Air Quality Model, version 2, Final Report to the State of Colorado, Office of Energy Conservation: Denver, CO (1999)
- 63 : Jacobson, M.Z., Development and Application of a New Air Pollution Modeling System - , Aerosol Module Structure and Design, Atmos. Environ., 31, 131-144 (1997)
- 64 : Byun, D.W., Ching, J.K.S. Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA/600/R-99/030, U.S. Environmental Protection Agency, Office of Research and Development: Washington, DC, (1999)
- 65 : Pun, B.; Zhang, Y.; Vijayaraghavan, K.; Wu, S.-Y; Seigneur, C.; Seinfeld, J.H. Development and Initial Application of the Model for Aerosol Dynamics, Reaction, Ionization, and Dissolution (MADRID), Presented at the A&WMA/AGU International Specialty Conference on Regional Haze and Global Radiation Balance, Bend, OR, October 2-5 (2001)
- 3 : Pai, P.; Vijayaraghavan, K.; Seigneur, C. Particulate Matter Modeling in the Los Angeles Basin Using SAQM-AERO; J. Air & Waste Manage. Assoc. 50, 23-42 (2000)
- 66 : Dabdub, D.; Dehaan, L.L.; Kumar, N.; Lurmann, F.; Seinfeld, J.H. Computationally Efficient Acid Deposition Model for California, Draft; California Air Resources Board: Sacramento, CA (1997)
- 12 : Strader, R.; Gurciullo, C.; Pandis, S.; Kumar, N.; Lurmann, F.W. Development of Gas-Phase Chemistry, Secondary Organic Aerosol and Aqueous-Phase Chemistry

- Modules for PM Modeling; Coordinating Research Council: Alpharetta, GA (1998)
- 56 : Lurmann, F.W.; Wexler, A.S.; Pandis, S.N.; Musarra, S.; Kumar, N.; Seinfeld, J.H. Modeling Urban and Regional Aerosols - . Application to California's South Coast Air Basin; *Atmos. Environ.*, 31, 2695-2715 (1997)
- 67 : Guthrie, P.D.; Axelrad, D.; Mansell, G.E.; Gao, D.; Brauerman, T.; Cocca, P.; Atkinson, R.D. Integrated Air Quality Modeling for Regulatory Applications: 1. Description of REMSAD; ICF Consulting/SAI, San Francisco, CA. Unpublished manuscript (1999)
- 68 : Seigneur, C.; Hidy, G.; Tombach, I.; Vimont, J; Amar, P. Scientific Peer-Review of the Regulatory Modeling System for Aerosols and Deposition (REMSAD); U.S. Environmental Protection Agency, Office of Air Quality Planning and Standards: Research Triangle Park, NC (1999)
- 69 : Lurmann, F.W. Simplification of the UAMAERO Model for Seasonal and Annual Modeling: The UAMAERO-LT Model; Final Report; South Coast Air Quality Management District: Diamond Bar, CA (2000)
- 70 : Lurmann, F.W.; Kumar, N. Development of Chemical Transformation Algorithms for Annual PM₁₀ Dispersion Models; Report STI-95410-1602-FR; South Coast Air Quality Management District: Diamond Bar, CA (1997)
- 71 : Odman, M.T.; Russell, A.G. A Multiscale Finite Element Pollutant Transport Scheme for Urban and Regional Modeling; *Atmos. Environ.*, 25, 2385-2394 (1991)
- 72 : Odman, M.T. Georgia Institute of Technology, School of Civil and Environmental Engineering, Atlanta, GA. Private communication (1999)

2.2 CMAQ の適応性について

(1) モデルの概要

鶴野ら (2005) により、CMAQ については、以下のようにまとめられている。

Community Multiscale Air Quality model (CMAQ) は、米国環境保護庁 (EPA) が 1998 年にリリースを行ったオイラー型大気質シミュレーションモデルで、地形、土地利用、発生源、気象とその他の入力条件をもとに大気環境の様々な問題に適用され、様々な大気汚染物質濃度の分布と湿性・乾性沈着量を与える (Byun and Ching, 1998)。従来の大気質モデルでは対象となる汚染物質の種類や、考慮すべき物理化学過程は、個々のモデルで個別に扱われていた。これに対して、CMAQ では都市や地域が直面する大気中の様々な大気汚染を、汚染物質相互の影響も含めて同時に取り扱い、また、それらに関係する多くの物理・化学過程を含めて扱うことにより現象を解明することを目指した一つの大气 (One Atmosphere) の概念に基づいている。そのため CMAQ は局地的なスケール-都市スケール-地域スケールを 1 つのフレームワークでまとめて扱うことができるマルチスケールのモデルで、1 つの格子サイズの想定解像度は 1km ~ 100km 程度である。

CMAQ は第 3 世代の物質輸送モデルと言われ、これは、気象モデルの利用を前提として、気象モデルの出力として、雲・降水、乱流拡散係数、摩擦速度などの物理量を積極的に用い、かつ、後述のように化学反応系、差分・積分スキームなどの主要なモジュールが選択可能 (プラグコンパチブル) で設計されている点にある。ソースコードは完全に公開されており、ユーザーが新たなモジュールを追加することも可能である。また、CMAQ はモデルの設計段階から、従来米国で広く使われていた UAM (Urban Airshed Model) と RADM (Regional Acid Deposition Model) の物理・化学過程を包含するように設計されており、UAM や RADM の代わりに使うことも可能である。さらに CMAQ は、one-way nesting することにより様々な空間スケールの現象が重層的に関与している対流圏オゾンや大気エアロゾルのようなマルチスケール大気汚染をシミュレートできること、移流・拡散・反応などのプロセス別濃度変化率をプロセス解析 (Process Analysis) できること、モデル格子内における大規模点源からの汚染プルームの挙動を表現する機能 (Plume-in-Grid) を有すること、バク情報やモデル更新情報が迅速に公開されモデルユーザー間の情報交換も活発に行われていること (<http://www.epa.gov/asmdnerl/models3/>) などの長所がある。

(2) CMAQ のインターフェース

CMAQ の光化学反応・移流・拡散モデル (CCTM : CMAQ Chemical Transport Model) の入力ファイルの作成のために、CMAQ はインターフェースを予め提供している。インターフェースとその機能を表 2-4 にまとめた。また、インターフェースと CCTM の関係を図 2-1 に示した。

表 2-4 CMAQ のインターフェース

インターフェース名	機能
ECIP (Emission-Chemistry Interface Processor)	<u>発生源データ作成</u> ECIP は MEPPS (Models3 Emission Processing and Projection System) の結果を用いて 1 時間毎の CCTM 用の 3 次元発生源データを作成する。 MEPPS : 米国の発生源データベースから半ば自動的に計算領域に対応した発生源データを作成するツール。ただし、領域が米国を対象としているため、本業務では用いていない。
MCIP (Meteorology-Chemistry Interface Processor)	<u>気象データ作成</u> MM5 の出力ファイルを CCTM 用のファイルに変換する。MCIP は MM5 の結果を必要な場合に内挿し、座標系変換を行う。
ICON (Initial Conditions)	<u>初期条件作成</u> 各化学種の初期濃度分布を与える。ICON では初期条件作成のため、清浄大気 (対流圏) における鉛直分布または CCTM の出力結果を用いる。
BCON (Boundary Conditions)	<u>境界条件作成</u> モデル境界の各化学種の濃度分布を与える。BCON では境界条件作成のため、清浄大気 (対流圏) における鉛直分布または CCTM の出力結果を用いる。
JPROC (photolysis processor)	<u>光解離定数データ作成</u> JPROC は光解離定数の計算のために、オゾンの鉛直分布、温度プロファイル、エアロゾルの数密度の鉛直分布および地表面のアルベドのデータを必要とする。また、JPROC は光解離定数を計算するために必要な紫外線のフラックスを放射伝達モデルを用いて計算している。
CCTM (CMAQ Chemical Transport Model)	<u>光化学反応・移流・拡散モデル</u> CMAQ のモデル本体。大気汚染物質予測に係わる光化学反応、移流、拡散過程を解いている。

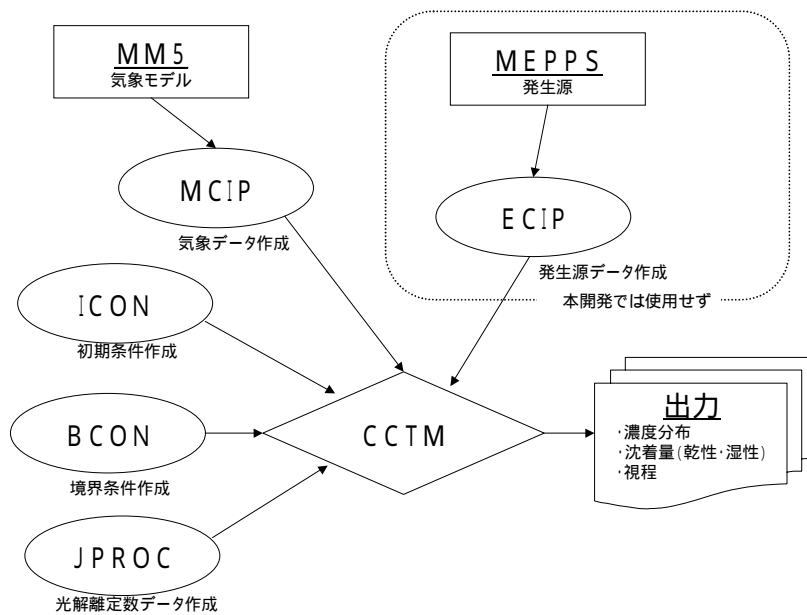


図 2-1 CMAQ のインターフェースを CCTM の関係

(3) 光化学反応・移流・拡散モデル(CCTM)の概要

CCTM は気象モデル(MM5)の結果及び発生源データを入力値として、大気汚染物質の光化学反応、移流・拡散及び沈着（乾性・湿性）の非線形・非定常場を解くモデルである。これらの各物理化学過程を計算するため CCTM は表 2-5 に示す各プロセスから構成されている。また、各プロセス間の関係を図 2-2 に示す。

表 2-5 CCTM に含まれるプロセス

プロセス名	機能
DRIVER	タイムステップの最適化、データの I/O 制御
HADV	水平方向の移流
VADV	鉛直方向の移流（対流）
ADJCON	移流プロセスにおける物質混合比の保存
HDIFF	水平拡散
VDIFF	鉛直拡散、地表面への沈着
CHEM	気体の光化学反応
CLOUD	粒子化における液滴の効果
AERO	無機粒子、有機粒子の生成と粒径分布及び視程の計算
PING	プルームの効果

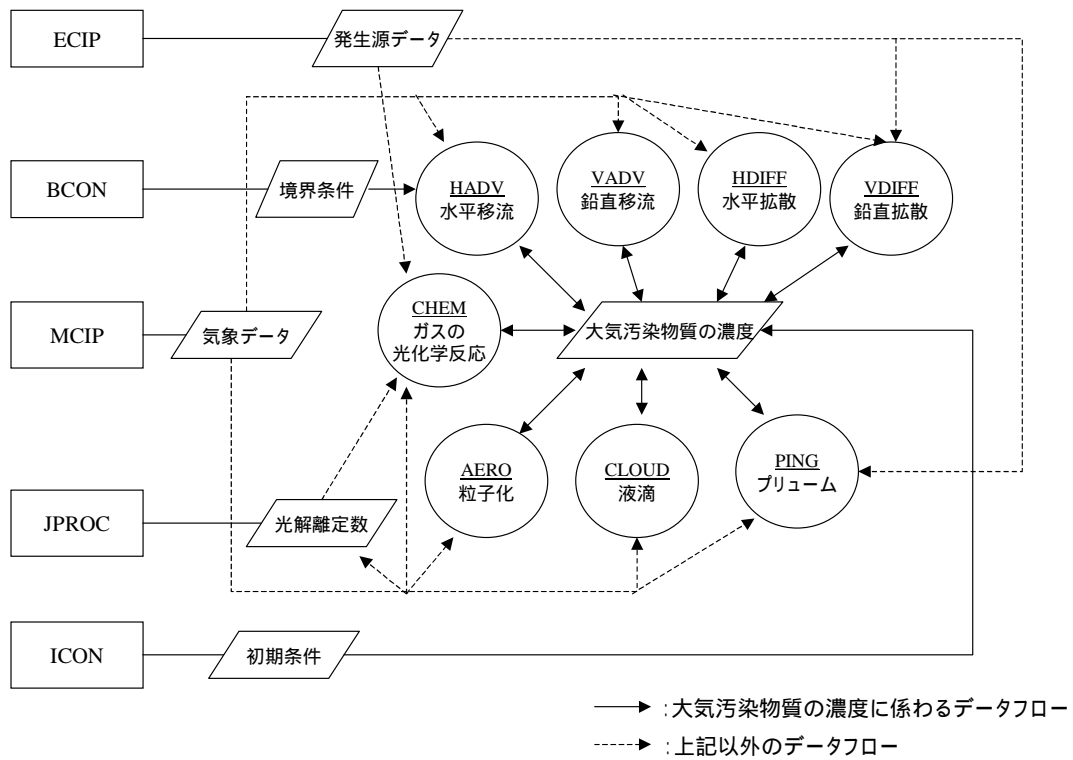


図 2-2 CCTM の各プロセス間の関係

(4) 適用事例

日本国内を対象とした CMAQ の適応事例を表 2 - 6 に示した。また、海外の適応事例については節末にまとめた。

表 2-6(1) 日本国内を対象とした CMAQ の適応事例

論文タイトル	A case study of high ammonia concentration in the nighttime by means of modeling analysis in the Kanto region of Japan
著者名	Tatsuya Sakurai, Shinichi Fujita, Hiroshi Hayami, Noritaka Furuhashi
出典	Atmospheric Environment, 37, 4461-4465 (2003)
概要	都心部では夏季の夜間にアンモニア濃度が高濃度で観測される現象が見られた。MM5-CMAQ によるシミュレーションを行った結果この現象が再現された。
シミュレーション	<ul style="list-style-type: none"> 計算領域は MM5 が 915 × 915 km (水平解像度 15 km) 365 km × 365 km (水平解像度 5 km)、CMAQ が 255 × 205 km (Fig. 1) 発生源は Kannari <i>et al.</i>(2001)を利用(1994 年ベース、資源エネルギー庁「窒素酸化物等環境影響評価実証調査」の成果の一部)。 化学反応モデルは CBM^v を使用。 初期値、境界値には気象庁客観解析データを利用。 シミュレーションの結果、神楽坂において夜間にアンモニア濃度が上昇する現象が再現出来た。 <p>(Fig. 3)</p> <div style="display: flex; justify-content: space-around;"> <div data-bbox="443 1211 788 1563"> <p>□ Akagi ○ Kagurazaka</p> <p>D-1: 915 × 915 km D-2: 365 × 365 km D-3: 255 × 205 km</p> <p>200 km</p> </div> <div data-bbox="922 1093 1326 1585"> </div> </div> <p>Fig. 1. Modeling domain system, consisting of nested 15 and 5 km grids.</p> <p>Fig. 3. Time variation for observed and calculated concentrations of NH₃ at Akagi and Kagurazaka. The numbers on the horizontal axis indicate the start time of each sampling. The observed wind velocity and wind direction averaged during every 3 h are also shown.</p>
備考	<ul style="list-style-type: none"> 都心部で夜間にアンモニア濃度が上昇するのは日中に関東北部で生成したアンモニアが、夜間に陸風により都心部に移流することが大きな原因である。 <p>Kannari, A., Baba, T., Hayami, H., 2001. Estimation of ammonia emission in Japan. Journal of Japan Society for Atmospheric Environment 36, 29 – 38 (in Japanese).</p>

表 2-6(2) 日本国内を対象とした CMAQ の適応事例

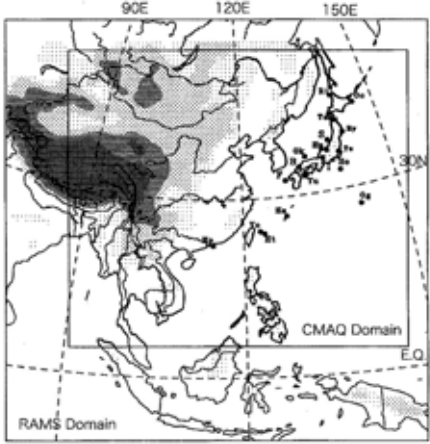
論文タイトル	RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションシステムの構築
著者名	鵜野伊津志, 大原利眞, 菅田誠治, 黒川純一, 古橋規尊, 山地一代, 谷本直隆, 弓本桂也, 植松光
出典	大気環境学会誌,40(4),148-164 (2005)
概要	RAMS の結果をもとにした CMAQ のアジア域に適用可能な連携システムを構築した。80km 格子の水平分解能で 2001 年 3,4 月の 2 ヶ月間に適用し、計算結果は、観測された濃度変動の特徴を再現することを確認した。
シミュレーション	<ul style="list-style-type: none"> ・計算領域は RAMS が東アジア域を全て含む東西 8000km、南北 7200km (80km 格子)。CMAQ はインドシナ半島を含む東南アジアの領域 (水平 80km 格子で 78×68、鉛直方向に 14 層、23km まで) (Fig.2) ・発生源は、Streets <i>et al.</i> (2003a,b) の結果を使用。 ・化学反応モデルは SAPRC-99 化学反応スキームと AERO3 エアロゾルモデル。 ・初期値、境界値には ECMWF の客観解析データを使用。 ・シミュレーションの結果は、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) や、VMAP 観測 (Matsumoto <i>et al.</i>,2003) のデータと比較を行い、観測された濃度変動の特徴を再現していた。 <div style="text-align: center;">  <p>Fig. 2 Numerical model domain of RAMS (outer grid) and CMAQ (inner grid). Character symbols are the location of observation sites (R=Rishiri, T=Tappi, Ry= Ryori, S=Sado, Hp=Happo, Ts=Tsukuba, Ha=Hachijo, Og=Ogasawara, Ok=Oki, B=Banryu, Yu=Yuzuhara, F=Fukue, He=Hedo/Okinawa, Ht=Hateruma and Yo=Yonaguni)</p> </div>
備考	三宅島の噴火の影響の有無を含む感度解析から、三宅島の SO ₂ の影響が中部日本から北日本の広範囲に渡ることが示された。

表 2-6(3) 日本国内を対象とした CMAQ の適応事例

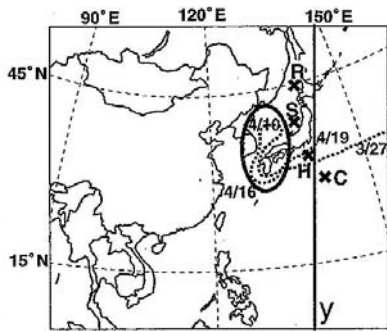
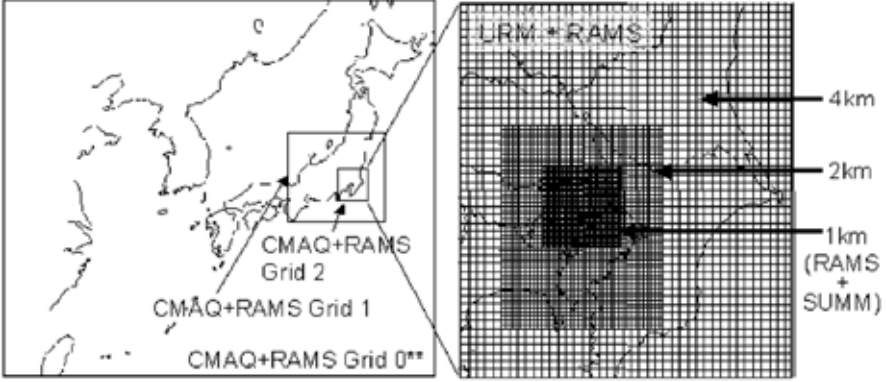
論文タイトル	東アジアにおける炭素粒子動態のモデル解析
著者名	谷本直隆, 大原利眞, 鶴野伊津志, 菅田誠治, 植松光夫
出典	大気環境学会誌,39(5),229-245 (2004)
概要	RAMS と CMAQ によって、2001 年 4 月の EC と OC の動態を解析した。結果として、東シナ海や日本海上で観測された濃度の時間変動パターンをよく再現した。2001 年 4 月の濃度分布の特徴を解析した。EC と OC の濃度に対するバイオマスバーニングの寄与率を求めた。OC を一次粒子、人為起源二次粒子、植物起源二次粒子に分類し、構成割合を解析した。
シミュレーション	<ul style="list-style-type: none"> ・計算領域は RAMS が北緯 25 度、東経 115 度を中心とした東アジア領域で、水平間隔 80km で 100×90、鉛直方向に 20 層、23km まで。CMAQ は北緯 31 度、東経 121 度を中心とし、水平間隔 80km で 79×72、鉛直方向に 16 層、20km まで。(Fig.1) ・発生源は、Streets <i>et al.</i> (2003a) の結果を使用。 ・化学反応モデルは CB4_AE_AQ (Byun and Ching,1999) を使用。 ・初期値、境界値には ECMWF の客観解析データを使用。 ・シミュレーションの結果は、東アジアにおける 2001 年 4 月の EC と OC の濃度の基本的な特徴を再現できた。地上においては EC が過少、OC は過大であったが、EC + OC に関してはモデルと実測は比較的良く一致する。 <div style="text-align: center;">  <p>Fig. 1. CMAQ domain. Cross points indicate the surface observation sites (R: Rishiri, S: Sado, H: Hachijo, C: Chichijima), dotted line is drawn along course of ship (R/V Ronald H. Brown), and a circled area shows flight area of Twin Otter. Y line shows a north-south line near the 140°E.</p> </div>
備考	OC のモデル濃度が過大となるケースがしばしばあり、その原因は、モデルの EC と OC がともに過大の場合は、モデルにおける湿性沈着過程が実際より過少に計算されており、モデルの OC だけが過大の場合は中国北部でのバイオマスバーニングによる排出量が過大評価されていると推測される。

表 2-6(4) 日本国内を対象とした CMAQ の適応事例

論文タイトル	CMAQ を用いた広域大気汚染解析技術の構築
著者名	森川多津子
出典	JCAP 技術報告書 PEC-2004AQ-09 Japan Clean Air Program
概要	広域大気質予測モデルである CMAQ を気象モデル RAMS との組み合わせで、東アジア～東日本～関東の領域に三重ネストによる計算を実施し、都心の大気質予測モデルである URM に境界条件を提供した。
シミュレーション	<ul style="list-style-type: none"> ・計算領域は東アジアの計算領域を最も外側の領域とした、東日本領域、関東領域と三重のネスティング領域を解いた。領域の投影法はポーラステレオ座標系、投影中心点は北緯 36 度東経 139 度。グリッドサイズは東アジア 80km 格子 (66×56)、鉛直 20 層、東日本領域 8km (66×66)、鉛直 19 層、関東領域 2km (62×62)、鉛直 19 層。(Fig.4.1) ・発生源は、JCAP で推計した全国領域の汚染物質排出量データ (ベースとなる年度は 2000 年度) を使用。 ・化学反応モデルは SAPRC-99 を使用。 ・シミュレーションの結果として、計算対象期間中の神田・深谷の 2 地点の計算結果・観測値の時系列変化は、NO_x はおおむね、大気汚染物質濃度を再現していると考えられる。しかしながら特に神田における O_x は過大であり、深谷における SPM は過小評価となっている。
	
	Fig.4.1 計算対象領域
備考	<p>東アジアの計算は、静岡大学工学部の大原利真教授らによる。</p> <p>今後、長距離輸送の精度を向上させるとともに、夏季を対象とした計算の実行、および長期間にわたる計算により年平均値の算出までを実施していく予定。</p>

(海外の適用事例)

Meigen Zhang, Itsushi Uno, Yasuhiro Yoshida, Yongfu Xu, Zifa Wang, Hajime Akimoto, Timothy Bates, Trish Quinn, Alan Bandy, Byron Blomquist, Transport and transformation of sulfur compounds over East Asia during the TRACE-P and ACE-Asia campaigns, *Atmospheric Environment*, 38, 6947 – 6959 (2004)

RAMS-CMAQ を用いて東アジア域の硫黄化合物(SO_2 及び SO_4^{2-})の長距離輸送をシミュレーションし、日本国内の実測データや航空機による観測データとの比較を行った。計算領域は $6240 \times 5440\text{km}$ で水平解像度は 80km 。

Pedro Jimenez, Rene Parra, Santiago Gasso, Jose M. Baldasano, Modeling the ozone weekend effect in very complex terrains: a case study in the Northeastern Iberian Peninsula, *Atmospheric Environment*, 39, 429 – 444 (2005)

MM5-CMAQ により、 O_3 濃度の weekend effect を検証。対象地域はスペインイベリア地方の $272 \times 272\text{km}$ の領域とし、化学反応モデルは CBM_v を使用。Weekend effect の主な原因は週末に NO_x が減少し、 NO_x/VOC 比が変化することであると結論。

Qi Mao, Larry L. Gautney, Torea M. Cook, Mary E. Jacobs, Shandon N. Smith, Jimmie J. Kelsoe, Numerical experiments on MM5-CMAQ sensitivity to various PBL schemes, *Atmospheric Environment*, 40, 3092 – 3110 (2006)

MM5-CMAQ において、種々の PBL スキームを利用した場合の計算結果を比較。対象領域はアメリカ南東部で水平解像度は 36km で計算。結果として本研究で対象とした広領域の計算では、PBL スキームの違いによる濃度計算結果への影響は少ないことがわかった。

Daniel Q. Tong, Denise L. Mauzerall, Spatial variability of summertime tropospheric ozone over the continental United States: Implications of an evaluation of the CMAQ model, *Atmospheric Environment*, 40, 3041 - 3056 (2006)

MM5-CMAQ を用いて、夏季の対流圏オゾン濃度をシミュレーションし、実測値と比較。対象領域はアメリカ全土で 36km メッシュで計算。

Meigen Zhang, Hajime Akimoto, Itsushi Uno, A three-dimensional simulation of HO_x concentrations over East Asia during TRACE-P, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 54, 233 - 254 (2006)

RAMS-CMAQ を用いて、東アジア領域の OH ラジカルおよび HO_2 ラジカル濃度を計算し、航空機観測による実測データと比較。計算領域は $6240 \times 5440\text{km}$ で水平解像度は 80km 、化学反応モデルには RADM2 を利用。

Pedro Jimenez, Oriol Jorba, Rene Parra, Jose M. Baldasano, Evaluation of MM5-EMICAT2000-CMAQ performance and sensitivity in complex terrain: High-resolution application to the northeastern Iberian Peninsula, Atmospheric Environment, 40, 5056 - 5072 (2006)

MM5-CMAQ によりスペインイベリア地方の約 300×300km の領域における O₃ をシミュレーション。化学反応モデルには CBM_v を使用し、水平解像度は 8km,4km,2km の 3 通りで計算。計算結果を実測値と比較した結果、海風が発達する期間においては、2km メッシュの計算結果の優位性が示された。

Yang Zhang, Ping Liu, Betty Pun, Christian Seigneur, A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the Summer 1999 Southern Oxidants Study episode—Part I: Evaluation protocols, databases, and meteorological predictions, Atmospheric Environment, 40, 4825 - 4838 (2006)

MM5-CMAQ による気象の計算結果(気温、湿度、風向風速等)を、観測データと比較。対象領域はアメリカ全土(水平解像度 32km)とアメリカ南東部(水平解像度 8km)。比較の結果、気温や湿度の日変化は良く再現されているが、最高気温を過大に予測する傾向がみられた。

Yang Zhang, Ping Liu, Ashley Queen, Chris Misenis, Betty Pun, Christian Seigneur, Shiang-Yuh Wu, A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the Summer 1999 Southern Oxidants Study episode—Part II: Gas and aerosol predictions, Atmospheric Environment, 40, 4839 - 4855 (2006)

MM5-CMAQ によるガス状物質(O₃,NO_x,HNO₃等)とエアロゾルの計算結果を実測データと比較。対象領域はアメリカ全土(水平解像度 32km)とアメリカ南東部(水平解像度 8km)で化学反応モデルは CBM_v を使用。

Yang Zhang, Ping Liu, Betty Pun, Christian Seigneur, A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the summer 1999 southern oxidants study episode, Part III: Diagnostic and mechanistic evaluations, Atmospheric Environment, 40, 4856 - 4873 (2006)

MM5-CMAQ による PM の計算結果(数濃度、体積濃度、表面積)を実測データと比較。対象領域はアメリカ南東部(水平解像度 8km)で比較した結果、数濃度は過大、体積、表面積は過小に予測する傾向がみられた。

Meigen Zhang, Itsushi Uno, Renjian Zhang, Zhiwei Han, Zifa Wang, Yifen Pu, Evaluation of the Models-3 Community Multi-scale Air Quality(CMAQ) modeling system with

observations obtained during the TRACE-P experiment: Comparison of ozone and its related species, Atmospheric Environment, 40, 4874 - 4882 (2006)

RAMS-CMAQ による東アジア域を対象とした化学種の濃度(O₃、OH ラジカル、NO_x 等)の計算結果を航空機観測による実測データと比較した。計算領域は 6240 × 5440km で水平解像度は 80km。化学反応モデルには RADM2 を利用。

Saravanan Arunachalam, Andrew Holland, Bebhinn Do, Michael Abraczinskas, A quantitative assessment of the influence of grid resolution on predictions of future-year air quality in North Carolina, USA, Atmospheric Environment, 40, 5010 - 5026 (2006)

MM5-MAQSIP(CMAQ のプロトタイプモデル)を用いて、水平解像度を变化させた場合の計算結果の比較を行った。対象領域はアメリカ南東部で水平解像度は 36/12/4km とし、化学反応モデルは CBM₅ を使用した。将来発生源シナリオを反映した計算結果は 4km と 12km の解像度で大きな差は認められなかった。

T.W. Tesche, Ralph Morris, Gail Tonnesen, Dennis McNally, James Boylan, Patricia Brewer, CMAQ/CAMx annual 2002 performance evaluation over the eastern US, Atmospheric Environment, 40, 4906 - 4919 (2006)

MM5-CMAQ と MM5-CAM_x による PM の濃度計算結果の検証を行った。アメリカ全土(水平解像度 32km)とアメリカ南東部(水平解像度 8km)で化学反応モデルは CB₅ を使用し、2002 年の 1 年間で評価を行った。両モデルともバイアスは冬季に大きく、夏季に小さくなる傾向がみられた。

2.3 大気質モデルの選定

これまでの検討結果から、本業務では化学輸送モデルとしては CMAQ を選定することとした。CMAQ 選定の主な理由は以下の通りである。

- ・ 本章冒頭でとりあげたシミュレーション高度化が必要な項目を、すべて満たしている
- ・ 他の大気質モデルと仕様を比較しても、CMAQ が最も先進的な知見を反映している
- ・ 日本国内をはじめ、世界的にも使用実績が近年増加している
- ・ 現在もバージョンアップが進められており、発展性が期待される
- ・ オープンソースであり、モデルの移植性、扱いやすさに優れる

引用文献

- 環境省, 平成 17 年度浮遊粒子状物質及び光化学オキシダントの生成に係る調査報告書,
(2006)
- Christian Seigneur, Current status of air quality models for particulate matter, *Journal of Air & Waste Management Association*, 51, 1508 – 1521 (2001)
- Shinji Wakamatsu, Itsushi Uno, Toshimasa Ohara, Kenneth L. Schere, A study of the relationship between photochemical ozone and its precursor emissions of nitrogen oxides and hydrocarbons in Tokyo and surrounding areas, *Atmospheric Environment*, 33, 3097-3108 (1999)
- Jhumoor Biswas, Christian Hogrefe, S. Trivikrama Rao, Winston Hao, Evaluating the performance of regional-scale photochemical modeling systems. Part III - Precursor predictions, *Atmospheric Environment*, 35, 6129 - 6149 (2001)
- D. G. Streets, Y.-S. Chang, M. Tompkins, Y. S. Ghim, L. D. Carter, Efficient regional ozone control strategies for the eastern United States, *Journal of Environmental Management*, 61, 345–365 (2001)
- 大原利眞, 鵜野伊津志, メソスケール大気汚染の数値シミュレーション, *大気環境学会誌*, 32, A40 – A57 (1997)
- 国立環境研究所, 都市域における VOC の動態解明と大気質に及ぼす影響評価に関する研究, 国立環境研究所特別研究報告, SR-42-2001, pp.24 (2001)
- 鵜野伊津志, 大原利眞, 菅田誠治, 黒川純一, 古橋規尊, 山地一代, 谷本直隆, 弓本桂也, 植松光夫, RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションシステムの構築, *大気環境学会誌*, 40, 148 -164 (2005)